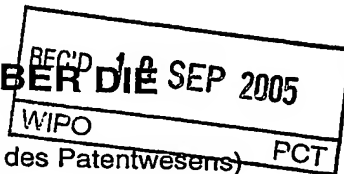



# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)



Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054630	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Formblatt PCT/PEA/416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/006035	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 04.06.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 06.06.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J29/06, C07D487/08, B01J29/40		
Anmelder BAS F AKTIENGESELLSCHAFT		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der Internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 7 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) Insgesamt 3 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben) , der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in computerlesbarer Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags  05.04.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  20.09.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt - P.B. 5818 Patentlaan 2 NL-2280 HV Rijswijk - Pays Bas Tel. +31 70 340 - 2040 Tx: 31 651 epo nl Fax: +31 70 340 - 3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Veefkind, V  Tel. +31 70 340-1017	



# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/006035

## Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
- ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
  - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
  - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile\*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf *(Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt)*:

### Beschreibung, Seiten

1-14 in der ursprünglich eingereichten Fassung

### Ansprüche, Nr.

1-25 in der ursprünglich eingereichten Fassung

- ☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll
3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☒ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☒ Ansprüche: Nr. 1-21
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

\* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/006035

---

**Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

---

**1. Feststellung**

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 18,19

Nein: Ansprüche 1-17,20-25

Erfinderische Tätigkeit (IS)

Ja: Ansprüche

Nein: Ansprüche 1-25

Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)

Ja: Ansprüche 1-25

Nein: Ansprüche:

**2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):**

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt I.**

Die mit Schreiben vom 05.04.2005 eingereichten Änderungen bringen Sachverhalte ein, die im Widerspruch zu Artikel 34(2)(b) PCT über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgehen. Es handelt sich dabei um folgende Änderungen:

Der ursprüngliche Anspruch 1 wurde durch Aufnahme spezifischen Selektionen von Merkmalen aus den ursprünglichen Unteransprüchen 9, 10 und 13 geändert (d.h. Oxid des Siliciums und/oder Zirkoniums wurde aus mehreren Oxiden ausgewählt und mit einem bestimmten Wasserdampfgehalt und einer Kalzinierung kombiniert). Diese spezifische Kombination von selektierten Merkmalen ist der ursprünglichen Offenbarung nicht eindeutig zu entnehmen.

Auch keines der Beispiele erscheint alle diese Merkmale eindeutig zu enthalten.

**Gemäß Regel 70.2(c) PCT ist dieser Bericht ohne Berücksichtigung dieser Merkmale erstellt worden (d.H. er basiert auf den ursprünglichen Ansprüchen).**

**Zu Punkt V.**

- 1 Im vorliegenden Bescheid wird auf folgende Dokumente verwiesen:
  - D1: EP-A-1 192 993 (TOSOH CORP) 3. April 2002 (2002-04-03)
  - D2: EP-A-0 130 407 (NITTO CHEMICAL INDUSTRY CO LTD) 9. Januar 1985 (1985-01-09)
  - D3: WO 91/04943 A (EXXON RESEARCH ENGINEERING CO) 18. April 1991 (1991-04-18)
  - D4: EP-A-1 215 211 (BASF AG) 19. Juni 2002 (2002-06-19)
  - D5: EP-A-0 842 936 (AIR PROD & CHEM) 20. Mai 1998 (1998-05-20)

**2 UNABHÄNGIGER ANSPRUCH 1**

- 2.1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 1 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist. Dokument D1 offenbart (Beispiel 1) ein H-ZSM-5 enthaltendes Extrudat welches mit einem Gas enthaltend 92% Wasserdampf bei einer Temperatur von 355°C über einen Zeitraum von sieben Tage behandelt wird. Der Absolutdruck kann atmosphärisch, erhöht, oder reduziert sein ([0042]). Dabei wird (implizit) die Schneidhärte erhöht.
- 2.2 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 1 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist. Dokument D2 offenbart (siehe im Recherchenbericht zitierte Passagen) Zeolithkatalysatoren welche mit einem Wasserdampf enthaltenden Gas bei einer Temperatur von 250 bis 700°C und einem Absolutdruck von 1-70 Atm über einen Zeitraum von 1-400 Stunden behandelt werden. Im Beispiel 1 ist der Zeolithkatalysator ein Mordenitextrudat. Auch hier wird (implizit) die Schneidhärte erhöht.
- 2.3 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 1 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist. Dokument D3 offenbart (Ansprüche 1 und 5) ein Verfahren zur Herstellung von Zeolith-Aggregaten, bei dem eine formbare Paste gebildet wird, die Paste zu einem Aggregat geformt wird (Formkörper), das Aggregat gehärtet wird, und das gehärtete Aggregat über einen Zeitraum welcher ausreichend ist um das Aggregat stärker und härter zu machen, hydrothermal calciniert wird.
- 3 UNABHÄNGIGER ANSPRUCH 15
- 3.1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 15 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist. Das Extrudat aus D1 (siehe auch oben) wird in einem Verfahren zur Herstellung von TEDA, ausgehend von N(2-aminoethyl)piperazine und Wasser, eingesetzt (Beispiel 1). Andere bevorzugte Ausgangsstoffe sind Ethylendiamine oder Piperazine.

**4 UNABHÄNGIGER ANSPRUCH 22**

- 4.1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 22 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist.  
Siehe Punkt 3.1, oben.

**5 UNABHÄNGIGER ANSPRUCH 23**

- 5.1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 23 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist.  
Siehe Punkt 3.1, oben.
- 5.2 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 23 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist.  
Dokument D2 offenbart die Aminierung von Methanol in Gegenwart eines Katalysators bei dem zuvor mit einem Verfahren gemäß Anspruch 1 die Schneidhärte erhöht wurde (siehe Punkt 2.2, oben).
- 5.3 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 23 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist.  
Dokument D3 offenbart (Ansprüche 1 und 5) ein Verfahren zur Herstellung von Zeolith-Aggregaten, bei dem eine formbare Paste gebildet wird, die Paste zu einem Aggregat geformt wird (Formkörper), das Aggregat gehärtet wird, und das gehärtete Aggregat über einen Zeitraum welcher ausreichend ist um das Aggregat stärker und härter zu machen, hydrothermal calciniert wird.  
Diese Aggregaten werden bei chemischen Syntheseverfahren eingesetzt.

**6 UNABHÄNGIGER ANSPRUCH 25**

- 6.1 Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand des Anspruchs 25 im Sinne von Artikel 33(2) PCT nicht neu ist.  
Siehe Punkte 5.1-5.3

**7 ABHÄNGIGE ANSPRÜCHE 2-14, 16-21, 24**

Die Ansprüche 2-14, 16-21, 24 enthalten keine Merkmale (auch hinsichtlich D4 und D5), die in Kombination mit den Merkmalen irgendeines Anspruchs, auf den sie sich beziehen, die Erfordernisse des PCT in Bezug auf Neuheit bzw. erfinderische Tätigkeit erfüllen.

## Geänderte Patentansprüche

1. Verfahren zur Erhöhung der Schneidhärte eines Formkörpers enthaltend ein kristallines Alumosilikat, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper ein Bindemittel, ausgewählt aus Oxid des Siliciums und/oder Zirkoniums, enthält und mit einem Gas bestehend aus Wasserdampf bei einer Temperatur von 100 bis 600°C und einem Absolutdruck von 0,1 bis 10 bar über einen Zeitraum von mindestens 20 Stunden behandelt wird und dass der Formkörper vor der Behandlung mit Wasserdampf bei Temperaturen von 100 bis 600°C calciniert wurde.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper über einen Zeitraum von mindestens 50 Stunden behandelt wird.
3. Verfahren nach einem der beiden vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper kontinuierlich mit einer WHSV (weight hourly space velocity) von 0,05 bis 5 g Wasserdampf pro Gramm Formkörper und pro Stunde ( $g_{\text{Wasserdampf}} / (g_{\text{Formkörper}} \cdot h)$ ) behandelt wird.
4. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper kontinuierlich mit einer WHSV (weight hourly space velocity) von 0,1 bis 1 g Wasserdampf pro Gramm Formkörper und pro Stunde ( $g_{\text{Wasserdampf}} / (g_{\text{Formkörper}} \cdot h)$ ) behandelt wird.
5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper bei einer Temperatur von 200 bis 450°C und einem Absolutdruck von 0,1 bis 2 bar behandelt wird.
6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper bei der Behandlung mit Wasserdampf fest angeordnet ist (Festbett).
7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass das kristalline Alumosilikat im Formkörper ein  $\text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$  - Molverhältnis von größer 10 : 1 aufweist.
8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass das kristalline Alumosilikat im Formkörper ein  $\text{SiO}_2 / \text{Al}_2\text{O}_3$  - Molverhältnis von größer 50 : 1 aufweist.

## 16

9. Verfahren nach einem der vorgehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das kristalline Alumosilikat im Formkörper zumindest teilweise in der  $H^+$  und/oder  $NH_4^+$ -Form vorliegt.
- 5 10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das kristalline Alumosilikat im Formkörper vom Pentasil-Typ ist.
- 10 11. Verfahren zur Herstellung von Triethylendiamin (TEDA) durch Umsetzung von Ethylendiamin (EDA) und/oder Piperazin (PIP) in Gegenwart eines kristallinen Alumosilikat-Katalysators, dadurch gekennzeichnet, dass man als Katalysator einen Formkörper einsetzt, bei dem zuvor mit einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10 die Schneidhärte erhöht wurde.
- 15 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass man die Umsetzung kontinuierlich und in der Gasphase durchführt.
- 20 13. Verfahren nach einem der beiden vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man EDA und eine oder mehrere Amin-Verbindung/en aus der Gruppe Monoethanolamin, Diethanolamin, Triethanolamin, PIP, Diethylentriamin, Triethylentetramin, Tri(2-aminoethyl)amin, Morpholin, N-(2-Aminoethyl)ethanolamin, N-(2-Hydroxyethyl)piperazin, N-(2-Aminoethyl)piperazin, N,N'-Bis(2-Aminoethyl)piperazin, N,N'-Bis(2-Hydroxyethyl)piperazin und N-(2-Aminoethyl)-N'-(2-Hydroxyethyl)piperazin umsetzt.
- 25 14. Verfahren nach einem der drei vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man EDA und 7 bis 250 Gew.-% Piperazin (PIP), bezogen auf EDA, umsetzt.
- 30 15. Verfahren nach einem der vier vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man EDA, 8 bis 250 Gew.-% PIP und 23 bis 300 Gew.-% Wasser, jeweils bezogen auf EDA, umsetzt.
- 35 16. Verfahren nach einem der fünf vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Reaktionstemperatur für die Umsetzung zu TEDA 310 bis 390°C beträgt.
- 40 17. Verfahren nach einem der sechs vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Absolutdruck bei der Umsetzung zu TEDA 0,1 bis 10 bar beträgt.

- 5 18. Verwendung eines Formkörpers enthaltend ein kristallines Alumosilikat, bei dem zuvor mit einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10 die Schneidhärte erhöht wurde, als Katalysator in einem Verfahren zur Herstellung von Triethylendiamin (TEDA) durch Umsetzung von Ethylendiamin (EDA) und/oder Piperazin (PIP).
- 10 19. Chemisches Syntheseverfahren in Gegenwart eines kristallinen Alumosilikat-Katalysators, dadurch gekennzeichnet, dass man als Katalysator einen Formkörper einsetzt, bei dem zuvor mit einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10 die Schneidhärte erhöht wurde.
- 15 20. Verfahren nach Anspruch 19, wobei es sich bei der Synthese um eine Alkylierung, Disproportionierung, Acylierung, Isomerisierung, Oligomerisierung, Aminierung, Alkoxylierung, Epoxidierung, Zyklisierung, Hydroxylierung, Kondensation, Hydratisierung oder Dehydratisierung handelt.
- 20 21. Verwendung eines Formkörpers enthaltend ein kristallines Alumosilikat, bei dem zuvor mit einem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 1 bis 10 die Schneidhärte erhöht wurde, als Katalysator in einem durch kristalline Alumosilikate katalysierten chemischen Syntheseverfahren.